

# PCT

## INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 25 MAR 2004

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>B02/0021PC</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 03/03538</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>04.04.2003</b>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>04.04.2002</b>
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK <b>C07D487/22</b>		
Anmelder <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.</b>		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.

2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 6 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  <b>02.10.2003</b>	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  <b>23.03.2004</b>
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  <div style="display: flex; align-items: center;"> <div>                         Europäisches Patentamt                          D-80298 München                          Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d                          Fax: +49 89 2399 - 4465                     </div> </div>	Bevollmächtigter Bediensteter  <b>Friebel, F</b>  Tel. +49 89 2399-8552



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-61 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-10 eingegangen am 27.01.2004 mit Telefax

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:
- ☐ Ansprüche,      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,      Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |  |
|--------------------------------|--|
| 1. Feststellung                |  |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-10<br>Nein: Ansprüche  |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-10<br>Nein: Ansprüche  |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche 1-10<br>Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Punkt V:**

Beansprucht sind cyclische Verbindungen, die sich ableiten von benzanellierten 5-Ring Heterocyclen; insbesondere handelt es sich um Cycloquaterbenzoxazole.

Die im Intern.Rech.Bericht genannten Dokumente sind bereits auf der Seite 3 der Anmeldung kurz abgehandelt. Im Zusammenhang mit der **US 3481945 (D1)** wird darauf hingewiesen, dass das darin offenbarte Verfahren nicht zum cyclischen Tetrabenzimidazol führt, sondern Fluoridin ergibt. Die Anmelderin stützt sich offenbar auf Angaben, die sich bereits in der **US 5180821 (D2)** finden. Die D1 wird danach nicht als relevant erachtet und im weiteren Verfahren nicht weiter berücksichtigt.

Was das Dokument D2 anbetrifft, hat sich die Anmelderin durch Streichen der Verwendung als Phasentransferkatalysator hinreichend abgegrenzt. Zuzustimmen ist auch der Argumentation, wonach D2 wohl unsubstituierte cyclische Tetrabenzimidazole offenbart, von der dort angegebenen Verwendung als Chelatbildner, bzw. in der Elektrooptik jedoch nicht ohne weiteres auf die im vorliegenden Fall angesprochenen Verwendungsgebiete: Lichtabsorber, OLEDs, Pigmentdispersionen sowie opt.Datenspeicher geschlossen werden könne.

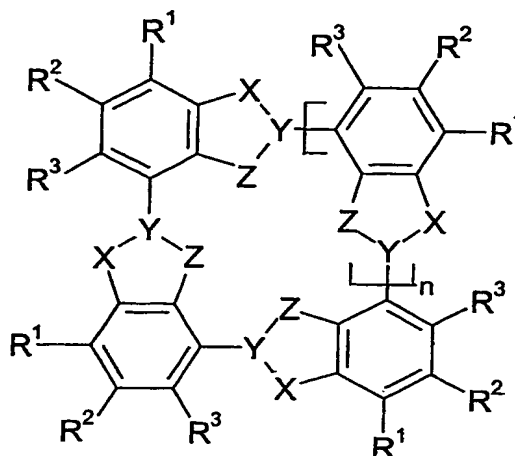
Der Substanzanspruch ist durch Disclaimer gegenüber D2 abgegrenzt und hinsichtlich der erf.Tätigkeit durch die neuen und nichtnaheliegenden Verwendungen mit getragen; die Erfordernisse der Art.33(2)(3) PCT scheinen erfüllt.

Was schliesslich das paper von **E.TAUER** in Synthesis anbetrifft, wird davon ausgegangen, dass die Priorität im vorliegenden Fall wirksam beansprucht ist.

## Geänderte Patentansprüche

1. Verwendung von cyclischen Verbindungen der allgemeinen Formel (I)

5



mit der Bedeutung

10

n Zahl im Bereich von 1 bis 7,

X-Y-Z jeweils unabhängig O-C=N, N=C-O, NR<sup>5</sup>-C=N, N=C-NR<sup>5</sup>, N<sup>+</sup>R<sub>2</sub><sup>5</sup>-C=N, N=C-N<sup>+</sup>R<sub>2</sub><sup>5</sup>, O-C=N<sup>+</sup>R<sup>5</sup>, N<sup>+</sup>R<sup>5</sup>=C-O, S-C=N<sup>+</sup>R<sup>5</sup>, N<sup>+</sup>R<sup>5</sup>=C-S, S-C=N, N=C-S,

15

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> jeweils unabhängig H oder Substituent der Gruppe C<sub>1-12</sub>-Alkyl, C<sub>1-12</sub>-Alkanoyl, C<sub>3-7</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6-12</sub>-Aryl, C<sub>7-13</sub>-Aralkyl, C<sub>7-13</sub>-Alkaryl, C<sub>1-12</sub>-Alkoxy, C<sub>6-12</sub>-Aryloxy, C<sub>1-12</sub>-Hydroxyalkyl, Heterocyclus, C<sub>6-12</sub>-Aroyl, die jeweils substituiert sein können, Hydroxy, Thiol, Halogen, Cyan, Isocyan, Nitro, Ammonium, Amino, Phosphin, Phosphinoxid, Sulfonsäure oder Derivat davon, Carbonsäure oder Derivat davon, Derivate des Siliziums, C<sub>2-12</sub>-Alkynyl oder C<sub>2-12</sub>-Alkenyl, wobei die Doppel- oder Dreifachbindungen direkt an das

20

Cycloquatergerüst gebunden sein können oder in der Kette stehen können, Carbamate der Formel  $\text{-NH-CO-OR}^7$ , substituierte Harnstoffe der Formel  $\text{-NR}^7\text{-CO-NR}^7_2$ , Alkylcarbonat-Substituenten der Formel  $\text{-O-CO-OR}^7$ , Sulfinsäure der Formel  $\text{-SO-OR}^7$  sowie Derivaten davon, Sulfoxide der Formel  $\text{-SO-R}^7$  sowie Derivate davon, Phosphonsäure, -salz, -ester- oder -amid davon,

wobei auch  $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  und/oder  $\text{R}^2$  und  $\text{R}^3$  jeweils unabhängig voneinander gegebenenfalls substituierte anellierte Ringsysteme aus 1 bis 3 Ringen bilden können, die Heteroatomgruppen enthalten können, oder gegebenenfalls substituierte Alkylengruppen bilden können, die durch Heteroatomgruppen unterbrochen sein können, wobei die anellierten Verbindungen auch wie vorstehend für die Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  angegeben substituiert sein können,

wobei in Sauerstoffatome tragenden Resten diese auch durch Schwefelatome ersetzt sein können,

wobei im Mittel 0,05 bis 100% der im Molekül vorliegenden Reste  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  von Wasserstoff verschieden sein können,

oder entsprechenden heterocyclischen Verbindungen, in denen mindestens eine Gruppe  $\text{-CR}^1\text{=}$ ,  $\text{-CR}^2\text{=}$ ,  $\text{-CR}^3\text{-CR}^3\text{=}$  durch  $\text{-N=}$  ersetzt ist

$\text{R}^5$  jeweils unabhängig H, gegebenenfalls substituiertes  $\text{C}_{1-12}$ -Alkyl,  $\text{C}_{6-12}$ -Aryl,  $\text{C}_{7-13}$ -Alkylaryl, gegebenenfalls substituiertes  $\text{C}_{1-12}$ -Alkanoyl, gegebenenfalls substituiertes  $\text{C}_{7-13}$ -Aryloyl, Oligoethylenglycol mit 1 bis 6 Sauerstoffatomen, Oligoethylenglycolether mit 1 bis 6 Sauerstoffatomen, Imidazoylmethyl oder ein entsprechender Rest, in dem ein N-Atom durch einen  $\text{C}_{1-12}$ -Alkylrest substituiert und gegebenenfalls positiv geladen ist und eine C-H Gruppe im Ring durch  $\text{C-(C}_{1-12}\text{-Alkyl)}$  ersetzt sein kann, (1- $\text{C}_{4-6}$ -Lactam)methyl, das am Ring  $\text{C}_{1-12}$ -Alkyl-substituiert sein kann,

$\text{R}^7$  jeweils unabhängig H,  $\text{C}_{1-12}$ -Alkyl,  $\text{C}_{6-12}$ -Aryl

sowie Tautomerenstrukturen davon

oder Metallkomplexen der cyclischen Verbindungen oder Komplexen der cyclischen Verbindungen mit Mineralsäuren,

5

wobei bei kationischen Cyclen als Gegenionen  $X^-$  Chlorid, Sulfat, Hydrogensulfat, Phosphat, Hydrogenphosphat, Nitrat,  $BF_4^-$ , Methansulfonat vorliegen,

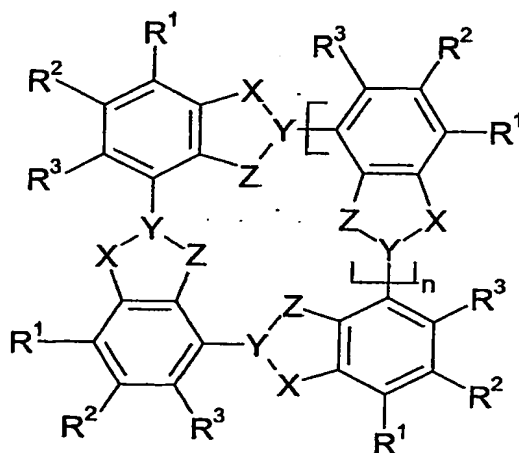
10

als Lichtabsorber, Materialien für Löcherinjektionsschichten in OLEDs, als lichtemittierende Verbindungen in OLED, als Synergisten zur Dispergierung von Pigmenten oder zur optischen Datenspeicherung.

2.

15

Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass cyclische Verbindungen der allgemeinen Formel (I)



(I)

20

mit der Bedeutung

27. Januar 2004

- 65 -

n ganze Zahl im Bereich von 1 bis 7,

X-Y-Z jeweils unabhängig O-C=N, N=C-O, NH-C=N, N=C-NH, S-C=N,  
N=C-S,

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> jeweils unabhängig H oder Substituent der Gruppe C<sub>1-12</sub>-Alkyl, C<sub>1-12</sub>-Alkanoyl, C<sub>3-7</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6-12</sub>-Aryl, C<sub>7-13</sub>-Aralkyl, C<sub>7-13</sub>-Alkaryl, C<sub>1-12</sub>-Alkoxy, C<sub>6-12</sub>-Aryloxy, C<sub>1-12</sub>-Hydroxyalkyl, Heterocyclus, C<sub>6-12</sub>-Aroyl, die jeweils substituiert sein können, Hydroxy, Thiol, Halogen, Cyan, Isocyan, Nitro, Ammonium, Amino, Phosphin, Phosphinoxid, Sulfonsäure oder Derivat davon, Carbonsäure oder Derivat davon, Derivate des Siliziums,

wobei auch R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> und/oder R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> jeweils unabhängig voneinander gegebenenfalls substituierte anellierte Ringsysteme aus 1 bis 3 Ringen bilden können, die Heteroatomgruppen enthalten können, oder gegebenenfalls substituierte Alkylengruppen bilden können, die durch Heteroatomgruppen unterbrochen sein können,

wobei im Mittel 0,01 bis 12 der im Molekül vorliegenden Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> von Wasserstoff verschieden sein können,

oder entsprechenden heterocyclischen Verbindungen, in denen mindestens eine Gruppe -CR<sup>1</sup>=, -CR<sup>2</sup>=, -CR<sup>3</sup> durch -N= ersetzt ist,

oder Metallkomplexen der cyclischen Verbindungen,

als Lichtabsorber, Materialien für Löcherinjektionsschichten in organischen licht-emittierenden Dioden (OLED)

oder als Synergisten zur Dispergierung von Pigmenten eingesetzt werden.



3. Verwendung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Lichtabsorber ein UV-Absorber und/oder Vis-Absorber ist.

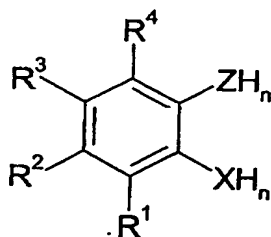
4. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die cyclischen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) in einem Anwendungsmedium in löslicher, teillöslicher oder nicht-löslicher Form eingesetzt werden, wobei in der nicht-löslichen Form auch Mischkristalle mit anderen Farbmitteln vorliegen können.

5. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  für alle Positionen dieselben Bedeutungen haben.

6. Cyclische Verbindungen oder Metallkomplexe der cyclischen Verbindungen oder Komplexe der cyclischen Verbindungen mit Mineralsäuren, wie sie in Anspruch 1 oder 2 definiert sind, ausgenommen cyclische Verbindungen mit der Bedeutung

X-Y-Z            N=C-O, NH-C=N, N=C-NH,  
 $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  H,  $C_{1-6}$ -Alkyl.

7. Verfahren zur Herstellung von cyclischen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 6 durch Cyclisierung von Verbindungen der allgemeinen Formel (II)



(II)

mit der Bedeutung

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ , X, Z wie

angegeben

27. Januar 2004

- 67 -

$R^4$  - -COOH oder Derivat davon,

5         $n$         jeweils 1 oder 2, zum Erhalt der Stöchiometrie,

wobei OH-Gruppen auch als Alkalimetallsalz- oder Ammoniumsalz-Gruppen vorliegen können und/oder  $NH_2$ -Gruppen in protonierter Form oder Derivat-Form als -NO, -NO<sub>2</sub>, -N=N-Aryl, =NOH, =NH vorliegen können, wobei die Cyc-

10        lisierung in Gegenwart von Metallsalzen, Metallpulvern oder von Lewis-Säuren als Templaten und in Gegenwart von Kondensationsmitteln oder unter wasser-entziehenden Bedingungen durchgeführt werden kann.

15        8.        Verfahren zur Herstellung von Komplexen cyclischer Verbindungen durch Herstellung der cyclischen Verbindungen nach einem Verfahren gemäß Anspruch 8 in Gegenwart von Metallsalzen, Metallpulvern, als Templaten oder durch Umsetzung von cyclischen Verbindungen gemäß Anspruch 7 mit Metallsalzen oder Metallpulvern.

20        9.        Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 5 als Lichtabsorber zum Einfärben von hochmolekularen organischen Materialien.

25        10.        Thermoplastische Formmassen, Lacke und Beschichtungszusammensetzungen, enthaltend Lichtabsorber, wie sie in einem der Ansprüche 1 bis 5 definiert sind.